

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-008110

(43)Date of publication of application : 13.01.1998

(51)Int.Cl.

B22F 3/26

(21)Application number : 08-156987

(71)Applicant : SUMITOMO METAL MINING CO
LTD

(22)Date of filing : 18.06.1996

(72)Inventor : OSAKO TOSHIYUKI
MURAOKA KENJI

(54) PRODUCTION OF TUNGSTEN-COPPER ALLOY SINTERED BODY

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method for producing a W-C alloy sintered body excellent in mass-productivity capable of inexpensively obtaining a small-sized W-Cu alloy sintered body having a complicated shape with high sintered density and thermal conductivity.

SOLUTION: W powder having $\leq 40\mu\text{m}$ average particle diameter is kneaded with an organic binder, then, the obtd. kneaded material is subjected to injection molding, and next, the binder is removed from the obtd. injected molded body, which is subjected to preliminary sintering at 900 to 1000°C preferably in a hydrogen atmosphere and is thereafter sintered at 1200 to 1450°C. Then, into the obtd. W sintered body, Cu is infiltrated at 1100 to 1300°C preferably in a hydrogen atmosphere so as to regulate its content to 5 to 30wt.% to the obtd. W-Cu alloy sintered body.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of
rejection]

[Kind of final disposal of application other than
the examiner's decision of rejection or
application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

JAPANESE [JP,10-008110,A]

CLAIMS DETAILED DESCRIPTION TECHNICAL FIELD PRIOR ART EFFECT OF THE
INVENTION TECHNICAL PROBLEM MEANS EXAMPLE

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-8110

(43) 公開日 平成10年(1998) 1月13日

(51) Int. CL ⁶	識別記号	序内整理番号	P I	技術表示箇所
B 2 2 F 3/26			B 2 2 F 3/26	D

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 4 頁)

(21) 出願番号	特願平8-150997	(71) 出願人	000183303 住友金属鉱山株式会社 東京都港区新橋5丁目11番3号
(22) 出願日	平成8年(1996) 6月18日	(72) 発明者	大迫 敏行 千葉県市川市中国分3-18-5 住友金属 鉱山株式会社中央研究所内
		(72) 発明者	村岡 健二 千葉県市川市中国分3-18-5 住友金属 鉱山株式会社中央研究所内

(54) 【発明の名称】 W-Cu合金焼結体の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 小型で、複雑形状のW-Cu合金焼結体が、高い焼結体密度および熱伝導率を有しながら安価に得られる。量産性に優れたW-Cu合金焼結体の製造方法を提供する。

【解決手段】 平均粒径40μm以下のW粉末を有機物バインダと混練し、次に、得られた混練物を射出成形し、次に、得られた射出成形体よりバインダを除去して、好ましくは水素雰囲気中で、900～1000℃で予備焼結後に1200～1450℃で焼結し、次に、得られたW焼結体にCuを、得られるW-Cu合金焼結体の5～30重量%となるように、好ましくは水素雰囲気中で1100～1300℃で溶浸するW-Cu合金焼結体の製造方法。

(2)

特開平10-8110

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 W粉末を有機物バインダと混練し、次に、得られた混練物を射出成形し、次に、得られた射出成形体よりバインダを除去して焼結し、次に、得られたW焼結体にCuを溶浸することを特徴とするW-Cu合金焼結体の製造方法。

【請求項2】 有機物バインダと混練するW粉末の平均粒径を40 μ m以下とすることを特徴とする請求項1に記載のW-Cu合金焼結体の製造方法。

【請求項3】 W焼結体に溶浸するCuの量を、得られるW-Cu合金焼結体の5-30重量%とすることを特徴とする請求項1または請求項2いずれかに記載のW-Cu合金焼結体の製造方法。

【請求項4】 射出成形体の焼結を水素雰囲気中で行うことを特徴とする請求項1～請求項3いずれかに記載のW-Cu合金焼結体の製造方法。

【請求項5】 射出成形体を焼結する際に本焼結の前に水素雰囲気中で900～1000℃で予備焼結することを特徴とする請求項1～請求項4いずれかに記載のW-Cu合金焼結体の製造方法。

【請求項6】 W焼結体へのCuの溶浸を水素雰囲気中で行うことを特徴とする請求項1～請求項4いずれかに記載のW-Cu合金焼結体の製造方法。

【請求項7】 射出成形体の焼結を1200～1450℃で行うことを特徴とする請求項1～請求項5いずれかに記載のW-Cu合金焼結体の製造方法。

【請求項8】 W焼結体へのCuの溶浸を1100～1300℃で行うことを特徴とする請求項1～請求項6いずれかに記載のW-Cu合金焼結体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、半導体の放熱基盤材料、ヒートシンク材等に用いられる熱伝導性に優れたW-Cu合金焼結体を製造する方法に関し、より詳しくは、小型で、複雑形状のW-Cu焼結体を従来より安価に得る製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】W-Cu合金焼結体は、機械的強度、熱伝導性に優れるため、半導体の放熱基盤材料、ヒートシンク材等に用いられている。近年、マイクロプロセッサ用、超小型演算処理装置用に用いるための、小型、複雑形状のW-Cu焼結体製品の需要が増加している。ヒートシンク材料としては、熱伝導率が高いことと、熱膨張率が半導体のセラミックスパッケージ材料と近いことが求められる。このため、W-Cuの組成は、重量%でCuが約80%以下のものが用いられる。

【0003】従来この材料は、W-Cu粉末を原料としてプレス成形し、この成形体を焼結して、更にこの焼結体を切削、研磨加工等して製造される。また最近になって射出成形粉末冶金法をW-Cu合金に適用する試みも

2

なされている(特開平2-501316号公報)。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかし、従来のW-Cu焼結体の製造方法ではプレス工程を伴うため、ヒートシンク材用途等の小型、複雑形状品の場合に切削加工等の後処理が必要となり加工費やそれに伴う原材料費等がかかって、生産性が低下し、高コストになる欠点を有していた。

【0005】また、ステンレス鋼、Fe-Ni-C系合金、チタン等の材料で行われているように、W-Cu粉末を射出成形し、この成形体を焼結する方法(メタル・インジェクション・モルディング、以下、「MIM」という。)も考えられるが、W-Cu合金の焼結においてはWとCuの反応が全く生じないため、そのまま従来の射出成形法を適用すると焼結体密度が上がらず、切削加工材に匹敵する熱伝導率が得られなかった。また焼結密度が低く、閉気孔が存在する場合には、半導体を封止することができなかった。

【0006】そこで、本発明の目的は、上記欠点を解消し、小型で、複雑形状のW-Cu焼結体が、高い焼結体密度および熱伝導率を有しながら、安価に得られる、生産性に優れたW-Cu合金焼結体の製造方法を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するための第1の本発明のW-Cu合金焼結体の製造方法は、W粉末を有機物バインダと混練し、次に、得られた混練物を射出成形し、次に、得られた射出成形体よりバインダを除去して焼結し、次に、得られたW焼結体にCuを溶浸することを特徴とする。

【0008】また、第2の発明は、上記第1の本発明の構成で更に、上記有機物バインダと混練するW粉末の平均粒径を40 μ m以下とすることを特徴とする。

【0009】また、第3の発明は、上記第1または第2の発明のいずれかの構成で更に、W焼結体に溶浸するCuの量を得られるW-Cu合金焼結体の5～80重量%とすることを特徴とする。

【0010】また、第4の発明は、上記第1～第3の発明のいずれかの構成で更に、上記射出成形体の焼結を水素雰囲気中で行うことを特徴とする。

【0011】また、第5の発明は、上記第1～第4の発明のいずれかの構成で更に、上記射出成形体の本焼結の前に900～1000℃で予備焼結することを特徴とする。

【0012】また、第6の発明は、上記第1～第4の発明のいずれかの構成で更に、上記W焼結体へのCuの溶浸を水素雰囲気中で行うことを特徴とする。

【0013】また、第7の発明は、上記第1～第5の発明のいずれかの構成で更に、上記射出成形体の焼結を1200～1450℃で行うことを特徴とする。また、第8

(3)

特開平10-8110

3

の発明は、上記第1～第6の発明のいずれかの構成で更に、上記W焼結体へのCuの溶浸を1100～1300℃で行うことを特徴とする。

【0014】

【発明の実施の形態】本発明において、W粉末のみを予めバインダと混練して射出成形するのは、WとCuの焼結温度が著しく異なるので、これらの混合粉の成形体を焼結すると、高温ではCuが揮散してしまい、低温ではWの焼結が進まないためである。Wは極めて融点が高いので、焼結を行うには粉末粒径にもよるが、一般に1400℃以上の高温が必要である。一方、Cuの融点は1083℃であるので、両者を同時に焼結することは好ましくない。

【0015】そこで、まず高融点のWのみをMIMにより焼結体とする。しかし、Wのみで緻密な焼結体を得るのは非常に困難であるのでこれを部分的に焼結し、空隙部を残置させてそこにCuを溶浸することにより緻密な焼結体を得る。

【0016】W粉末の成形に用いるバインダは、射出成形するため可塑性材料を含むことが必要で、従来のMIM法で一般的に用いられるものが使用できる。例えば、低密度ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン酢酸共重合体、カルナバワックス、パラフィンワックス、ポリエチレンワックス、ステアリン酸等である。

【0017】W粉末とバインダとの混練方法は、従来のMIM法で一般的に用いられるものが使用できる。例えば、万能混合攪拌機、二軸ニーダ等の装置を用いた方法である。

【0018】W粉末とバインダとの混練割合は、バインダ組成にもよるが、一般的にバインダ量が混練物に対し、8～10重量%程度とするのが望ましい。成形体よりバインダを除去する方法は、従来のMIM法で一般的に用いられるものが使用できる。例えば、大気中及び不活性雰囲気中での加熱除去、溶媒抽出法及びそれらを組み合わせる方法等である。

【0019】焼結方法は、従来のMIM法で一般的に用いられるものが使用できる。例えば、金属製ヒータの連続式またはバッチ式の焼結炉において、水素雰囲気中にて900～1000℃で1～3時間保持し、更に1200～1450℃で1～8時間保持した後に、炉冷によって冷却して焼結体を得る。焼結の条件は、粉末粒径および添加Cu量によって適宜選択する。

【0020】得られたW焼結体に溶浸するCuの量は、多いほど密度および熱伝導率が高くなるが、同時に熱膨張率も大きくなるので、得られるW-Cu合金焼結体に対して5～30重量%とする。5重量%未満ではCu量が少ないために緻密な焼結体を得るのが難しく、30重量%を超えると熱膨張率が大きくなってしまいうからである。

【0021】また、W焼結体中の空隙部の体積がCuの

4

体積よりも大きな場合には空隙がCuで満たされず、緻密な焼結体を得られない。空隙部の体積が小さい場合には過剰なCuが焼結体表面に析みだしてしまう。従って、添加するCuが適切な量となるようにWの焼結条件を選択する必要がある。

【0022】本焼結の前に900℃～1000℃の保持を入れることにより、焼結の進行を助勢し、焼結温度を低下させる効果がある。更に、焼結密度や、熱伝導率の低下を招くW酸化物を還元させる効果もある。900℃以下では焼結を助勢する効果が得られず、1000℃以上ではW酸化物の還元反応が低下する。焼結温度が1200℃よりも低いと十分な焼結密度が得られないので、Wの焼結は1200℃以上で行うのが望ましく、1450℃以下で十分である。望ましくは、1250～1400℃である。

【0023】W焼結体へのCuの溶浸は、例えば、W焼結体上にCuを載せ、再度加熱しCuを溶融すればよい。このようにして溶融されたCuがW焼結体に溶浸して、緻密なW-Cu合金焼結体を得る。Cuの溶浸は、1100～1300℃で行う。1100℃未満ではCuが十分溶融状態にならず、W焼結体に溶浸しないからであり、また、1300℃を超えるとCuが揮散してしまい、エネルギー・コストも上昇するためである。

【0024】W粉末の焼結およびCuの溶浸における雰囲気は、不要な酸化物を水素が還元するために、水素雰囲気で行うのがよい。

【0025】以上の方法により、小型、複雑形状のW-Cu合金焼結体を得られる。

【0026】

【実施例】以下に、本発明の代表的な実施例を示す。W粉末には、東京タングステン（株）製の平均粒径1.3μmのW粉末を用いた。バインダには、パラフィンワックス、低密度ポリエチレン、ほう酸エステルを主成分とする溶れ剤、を重量比3：1：1で配合したものを用いた。これらW粉末とバインダとを重量比92：8で混練した。混練は、万能混合攪拌機を用いて140℃にて1時間混合した。

【0027】この混練物をペレット状に造粒し、厚さ5mm、直径10mmの円盤状テストピースを射出成形した。射出圧は75MPa、射出温度は120℃とした。次にこのテストピースを窒素雰囲気中で室温から400℃まで20℃/時の昇温速度で昇温し、熱分解によりバインダを除去した。さらに、脱バインダした成形体を焼結炉に投入し、水素雰囲気中で室温から1000℃まで10℃/分の昇温速度で昇温し、1000℃で2時間保持した後に、1400℃まで10℃/分の昇温速度で昇温し、1400℃で2時間保持した。その後、室温まで炉冷し、W焼結体を得た。そのW焼結体の上に、W-Cu合金に対して16～20重量%となるように秤量した電気銅を載せ、再度水素雰囲気中で室温から1150℃

(4)

特開平10-8110

5

6

まで10℃/分の昇温速度で昇温し、1150℃で1時間保持した。

【0028】その後、室温まで炉冷し、W-Cu合金焼結体を得た。このようにして得られた焼結体について、(1)アルキメデス法による相対密度の測定、(2)熱膨張率の測定、(3)レーザーフラッシュ法による熱伝導率の測定を行った。結果を表1に示す。表1には各試料の密度、熱膨張率、熱伝導率を示す。

*【0029】また比較試料として、W粉末と平均粒径0.5μmのCu粉末を24時間ボールミル混合した粉末を用い、上記試料と同様に射出成形、バインダを除去した試料を、水素中1200～1400℃、2時間焼結した試料について同様の測定を行った。結果を表1に示す。

【0030】

【表1】

実験番号	粉末粒径 (μm)	Cu量 (重量%)	焼結温度 (℃)	焼結時間 (時間)	溶浸温度 (℃)	溶浸時間 (時間)	相対密度 (%)	熱膨張率 (ppm/℃)	熱伝導率 (W/mk)	備考
1	1.3	18	1400	2	1150	1	97.5	6.7	203	実施例
2	1.3	20	1350	2	1150	1	97.9	6.9	212	実施例
3	1.3	25	1400	2	1150	1	98.3	7.7	218	比較例
4	0.5	20	1250	2	—	—	87.4	6.8	130	比較例
5	0.5	20	1550	2	—	—	83.1	6.8	145	比較例

【0031】本発明方法によるW-Cu合金焼結体(実施例1～3)は、いずれも97%以上の相対密度を有し、200W/mkを超える高い熱伝導率をもつことが分かる。それに対し、比較方法で作製した試料(比較例4～5)は、焼結温度が低い場合にはW粒子の再配列が進まず密度が低く、また焼結温度を高くした場合にはCuが揮散してしまうためにやはり高い密度は得られない。そのため熱伝導率も低く、要求特性を満たさない。※

※【0032】次に、本発明の方法によって得られる焼結体の特性は、Wの平均粉末粒径、Cu量、焼結雰囲気、焼結温度、溶浸温度などによって決まるので、これらの条件を変化させて試料を作製した。各試料の条件と得られた焼結体の特性を表2に示す。

【0033】

【表2】

実験番号	粉末粒径 (μm)	Cu量 (重量%)	焼結温度 (℃)	焼結時間 (時間)	溶浸温度 (℃)	溶浸時間 (時間)	相対密度 (%)	熱膨張率 (ppm/℃)	熱伝導率 (W/mk)	備考
6	1.6	20	1400	2	1150	1	96.4	6.9	204	実施例
7	20	24	1400	2	1150	1	95.2	7.3	215	実施例
8	1.5	20	1200	2	1150	1	80.1	6.7	160	比較例
9	3	5	1500	2	1150	1	84.4	5.1	125	比較例
10	3	20	1500	2	1350	1	89.5	6.3	155	比較例
11	45	20	1500	2	1150	1	87.4	6.7	148	比較例

【0034】本発明の実施例6、7ではいずれも良好な熱的特性を示している。それに対し、焼結温度の低い比較例8ではW焼結体の密度が低いためにCu液相量が足らず、本発明の実施例に比較して焼結体密度は低くなっている。また、Cu量の少ない比較例9では熱膨張率は小さいが、やはり十分な密度が得られない。Cu溶浸温度の高い比較例10ではCuが揮散してしまう。W粒径の大きな比較例11では1500℃まで焼結温度を上げ

ても焼結体密度は上がらない。

【0035】

【発明の効果】本発明によれば、従来高密度を得ることが難しかったMIM法を用いて、小型で、複雑形状のW-Cu焼結体が、高い焼結体密度および熱伝導率を有しながら安価に得られ、生産性に優れたW-Cu合金焼結体の製造方法が提供できた。